

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2004 年 9 月 30 日 (30.09.2004)

PCT

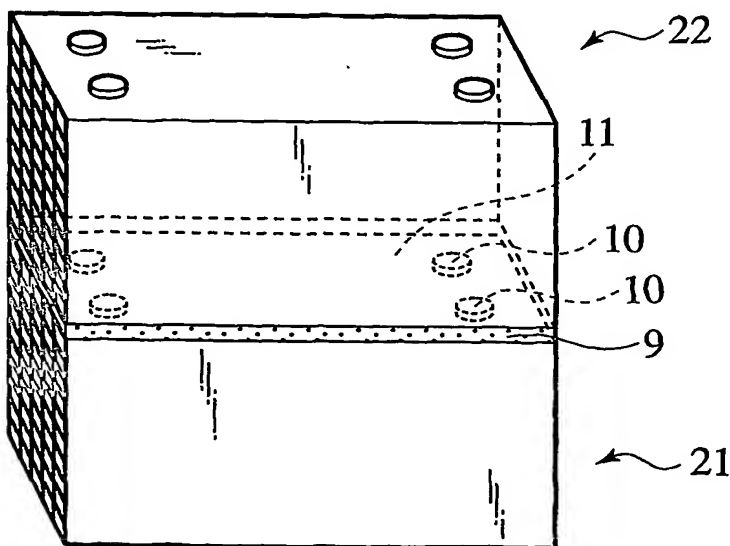
(10) 国際公開番号  
WO 2004/083149 A1

- (51) 国際特許分類<sup>7</sup>: C04B 37/00, B01D 39/20, 46/00, F01N 3/022
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2004/003672
- (22) 国際出願日: 2004 年 3 月 18 日 (18.03.2004)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願2003-076405 2003 年 3 月 19 日 (19.03.2003) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日本碍子株式会社 (NGK INSULATORS, LTD.) [JP/JP]; 〒4678530 愛知県名古屋市長区瑞穂区須田町 2 番 5 6 号 Aichi (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 梶川 直 (MA-SUKAWA, Naoshi) [JP/JP]. 市川 周一 (ICHIKAWA, Shuichi) [JP/JP].
- (74) 代理人: 中村 友之 (NAKAMURA, Tomoyuki); 〒1050001 東京都港区虎ノ門 1 丁目 2 番 3 号 虎ノ門第一ビル 9 階 三好内外特許事務所内 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:  
— 国際調査報告書

[続葉有]

(54) Title: HONEYCOMB STRUCTURE AND METHOD OF MANUFACTURING THE SAME

(54) 発明の名称: ハニカム構造体とその製造方法



(57) Abstract: A honeycomb structure, comprising a plurality of honeycomb segments having a plurality of flow holes partitioned by porous partition walls and passed therethrough in an axial direction, spacers disposed between the adjacent honeycomb segments among the plurality of honeycomb segments, and connection layers positioned between the honeycomb segments between which the spacers are disposed and connecting the adjacent honeycomb segments to each other. The Young's modulus of the spacers is 0.1 to 1.5 GPa, and the ratio of the area of the spacers to the area of the connection layers between the adjacent honeycomb segments is 0.2 to 30%.

(57) 要約: 多孔質の隔壁により仕切られた、一軸方向に貫通する複数の流通孔を有する複数のハニカムセグメントと、複数のハニカムセグメントのうち、隣接し合うハニカムセグメント間に配置されたスペーサと、スペーサが配置されたハニカムセグメント間に在り、隣接し合うハニカムセグメントを接合する接合層とを有するハニカム構造体である。スペーサは、ヤング率が 0.1 ~ 1.5 GPa であり、かつ、隣接し合う各ハニカムセグメント間における接合層の面積に対するスペーサの面積の比率が 0.2 ~ 30% である。

ニカムセグメントを接合する接合層とを有するハニカム構造体である。スペーサは、ヤング率が 0.1 ~ 1.5 GPa であり、かつ、隣接し合う各ハニカムセグメント間における接合層の面積に対するスペーサの面積の比率が 0.2 ~ 30% である。



2文字コード及び他の略語については、定期発行される  
各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語  
のガイダンスノート」を参照。

## 明細書

## ハニカム構造体とその製造方法

## 技術分野

本発明は、ディーゼルエンジン等からの排ガスに含まれているパティキュレートを捕捉して除去するためのD P F (ディーゼルパティキュレートフィルタ)、その他の捕集フィルタに用いられるハニカム構造体とその製造方法に関する。

## 10 背景技術

この種のハニカム構造体は、炭化珪素等からなる多孔質のハニカムセグメントが接合層によって複数接合され、円形断面等の所定の形状に成形された後、周囲がコート材層により被覆された構造となっている。このハニカム構造体はディーゼルエンジンの排気系内に配置されることにより、排ガスを浄化するために使用される。

それぞれのハニカムセグメントは多孔質の隔壁によって仕切られ、且つ軸方向に貫通する多数の流通孔を有している。また、隣接している流通孔においては、一端部が交互に目封じされるものであり、一の流通孔においては、一側の端部が開口している一方、他側の端部が目封じされており、これと隣接する他の流通孔においては、他側の端部が目封じされるが、一側の端部が開口されている。

このような構造とすることにより、開口している端部から排ガスが流通孔に流入すると、排ガスは多孔質の隔壁を通過して他の流通孔から流出し、隔壁を通過する際に排ガス中のパティキュレートが隔壁に捕捉されるため、排ガスの浄化を行うことができる。

このようなハニカム構造体では、複数のハニカムセグメ

ントが接合された構造となっているが、接合層の厚さが均一であることが好ましい。接合層の厚さが不均一の場合は、部分的な熱伝導率の不均一を起こすため、高温使用時の応力集中を生じやすく、ハニカム構造体の耐久性を低下させるためである。また、接合層が厚すぎると、ハニカム構造体の圧力損失が大きくなってパティキュレートの捕捉効率が低下し、逆に薄すぎると接合層による応力緩和の効果が損なわれるためである。

接合層の厚さを均一にするため、従来では、紙、無機物質、セラミック、有機繊維、樹脂等からなる所定の厚さのスペーサ（間隔保持材）をハニカムセグメントの間に配置した状態でハニカムセグメントを接合することにより、接合層の厚さをスペーサの厚さとほぼ同等とすることが行われている（日本特許公開 2002-102627 号公報）。

ハニカムセグメントの相互の接合は、ハニカムセグメントにスペーサを固定し、スペーサの固定状態でハニカムセグメントに接合材を塗布した後、押圧することにより行われる。このようなハニカムセグメントの接合において、十分な接合力を得るためには、一定以上の圧力を作用させる必要があるが、圧力を作用させる際に、スペーサのハニカムセグメントへの食い込み等が発生し、ハニカムセグメントにダメージを与える場合があった。

#### 発明の開示

本発明の目的は、ハニカムセグメントの接合時にスペーサによるハニカムセグメントへのダメージの発生を抑制するとともに、ハニカムセグメント同士が良好に接合されたハニカム構造体を提供することである。

上記目的を達成するために、本発明の態様によるハニ

カム構造体は、多孔質の隔壁により仕切られた、一軸方向に貫通する複数の流通孔を有する複数のハニカムセグメントと、複数のハニカムセグメントのうち、隣接し合うハニカムセグメント間に配置されたスペーサと、スペーサが配置されたハニカムセグメント間に在り、隣接し合うハニカムセグメントを接合する接合層とを有する。スペーサは、ヤング率が  $0.1 \sim 1.5 \text{ GPa}$  であり、かつ、隣接しあう各ハニカムセグメント間における接合層の面積に対するスペーサの面積の比率が  $0.2 \sim 30\%$  である。

また、本発明の態様によるハニカム構造体の製造方法は、多孔質の隔壁により仕切られ、一軸方向に貫通する複数の流通孔を有する、一のハニカムセグメントの一外周面である接合面上に、ヤング率が  $0.1 \sim 1.5 \text{ GPa}$  のスペーサを、接合面の面積に対しスペーサの面積の比率が  $0.2 \sim 30\%$  となるように、配置する工程と、スペーサが固定された接合面上に接合材をコーティングする工程と、接合面上に、他のハニカムセグメントを積層し、ハニカムセグメント積層体を形成する工程と、ハニカムセグメント積層体に外部より圧力をかけて、一のハニカムセグメントと他のハニカムセグメントとを接合する工程とを有する。

#### 図面の簡単な説明

図 1 は、本発明の実施の形態に係るハニカム構造体の斜視図である。

図 2 は、本発明の実施の形態に係るハニカムセグメントの斜視図である。

図 3 は、図 2 に示すハニカムセグメントの断面図である。

図 4 ～ 図 6 は、本発明の実施の形態に係るハニカム構造

体の製造工程中、ハニカムセグメントを接合する工程を示す斜視図である。図4はハニカムセグメントの接合面上にスペーサを配置する工程、図5はその接合面上に接合材をコーティングする工程、そして図6は接合材を介して2つのハニカムセグメントを接合する工程を示す。

図7は、ハニカムセグメントの接合強度を測定する方法を示す概略図である。

#### 発明を実施するための最良の形態

10 本発明の実施形態におけるハニカム構造体は、図1に示すように、複数のハニカムセグメント2（21、22、23等）が接合層9によって接合されるものであり、ハニカムセグメント2の接合の後、円形断面、楕円断面、三角断面その他の断面となるように研削加工され、周囲がコート剤層4によって被覆されることにより構成されている。

15 それぞれのハニカムセグメント2は、図2及び図3に示すように、多孔質の隔壁6によって仕切られた多数の流通孔5を有している。流通孔5はハニカムセグメント2を軸方向に貫通しており、隣接している流通孔5における一端部が充填材7によって交互に目封じされている。すなわち、一の流通孔5においては、左端部が開口している一方、右端部が充填材7によって目封じされており、これと隣接する他の流通孔5においては、左端部が充填材7によって目封じされるが、右端部が開口されている。

25 このような構造とすることにより、ハニカム構造体1を例えばDPFとして用いた場合には、図3の矢印に示すように、排ガスは左端部が開口している流通孔に流入した後、多孔質の隔壁を通過して他の流通孔から流出する。そして、隔壁6を通過する際に排ガス中のパーティキュレートが隔壁

6に捕捉されるため、排ガスの浄化を行うことができる。

なお、ハニカムセグメント2としては、正方形断面となっているが、三角形断面、六角形断面等の適宜の断面形状とすることができるものである。また、流通孔5の断面形状においても、三角形、六角形、円形、楕円形、その他の形状とすることができる。

ハニカムセグメント2の材料としては強度、耐熱性の観点から、コーージェライト、ムライト、アルミナ、スピネル、炭化珪素、炭化珪素－コーージェライト系複合材、珪素－炭化珪素複合材、窒化珪素、リチウムアルミニウムシリケート、チタン酸アルミニウム、Fe－Cr－Al系金属からなる群から選択される1種もしくは複数種を組み合わせた材料を使用することが好ましい。

また、ハニカムセグメント2の熱伝導率としては、10～60 W/m・Kの範囲が好ましく、15～55 W/m・Kの範囲であることがより好ましく、20～50 W/m・Kの範囲であることが最も好ましい。従って、このような観点からは、ハニカムセグメント2の材料としては、炭化珪素または珪素－炭化珪素複合材料が特に適している。

ハニカムセグメント2の製造は、上述した中から選択された材料にメチルセルロース、ヒドロキシプロポキシルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、ポリビニルアルコール等のバインダ、界面活性剤や水等を添加して可塑性の坯土を作製し、この坯土を押出成形することにより、隔壁6によって仕切られた軸方向に貫通する多数の流通孔5を有するハニカム形状とする。そして、これをマイクロ波、熱風等によって乾燥した後、焼結することによりハニカムセグメント2を作製することができる。

図 4 ～ 図 6 は、ハニカムセグメント 2 の基本的な接合手順を示す。なお、接合すべきハニカムセグメント 2 の数は二つに限られないが、ここでは、便宜的に二つのハニカムセグメント 2 1 と 2 2 を接合する場合を例にとって説明する。

本実施の形態のハニカム構造体の製造工程では、接合に先立って、図 4 に示すように、ハニカムセグメント 2 1 の接合面 2 1 a にスペーサ 1 0 を配置する。続いて、図 5 に示すように、スペーサが配置された接合面 2 1 a 上に接合材 1 1 を塗布する。その後、図 6 に示すように、塗布された接合材 1 1 上に他のハニカムセグメント 2 2 を積層し、外部よりこの積層体を加圧することにより二つのハニカムセグメント 2 1 及び 2 2 を接合する。加圧においては、 $0.3 \sim 3 \text{ kgf/cm}^2$  程度の圧力で押圧することが好ましく、さらに好ましくは、 $0.5 \sim 2 \text{ kgf/cm}^2$  程度の圧力で押圧することが好ましい。

図 4 ～ 図 6 に示す接合手順を繰り返すことにより、必要な数のハニカムセグメント 2 を接合し、一体化したハニカムセグメント集合体を形成する。なお、加圧工程は 3 以上のハニカムセグメントの積層体に対しまとめて行うこともできる。

スペーサ 1 0 は、接合材 1 1 からなる接合層 9 (図 1 及び図 6 参照) の厚さを均一にするために隣接し合うハニカムセグメント 2 1 と 2 2 の間に配置するものである。スペーサ 1 0 の設置位置は、図 4 に示す四隅部分に限定されるものではなく、積層するハニカムセグメント 2 2 を接合面 2 1 a に対し平行に支持できる箇所であれば適宜変更することができる。この場合、スペーサ 1 0 の形状及び大きさは、全てのスペーサ 1 0 を合わせた面積が接合層 9 の面積



と後述する比率となるように設定される。

接合材 1 1 の材料としては、ハニカムセグメント 2 の材料に合ったものが使用される。このため、接合材 1 1 としては、セラミックスを主成分としたものが好適であり、炭  
5 化珪素、窒化珪素、コージェライト、アルミナ、ムライト  
等の無機粒子または繊維とコロイダルシリカ、コロイダル  
アルミナ等のコロイダルゾルの混合物に必要な応じて金属  
繊維等の金属、造孔材、各種セラミックスの粒子などを添  
加した材料を選択することができる。

- 10 接合材 1 1 の熱伝導率としては  $0.1 \sim 5 \text{ W/m} \cdot \text{K}$  であることが必要であり、 $0.2 \sim 3 \text{ W/m} \cdot \text{K}$  であることがより好ましい。接合材 1 1 の熱伝導率が  $0.1 \text{ W/m} \cdot \text{K}$  未満の場合には、ハニカムセグメント 2 の間の熱伝達を  
15 阻害しハニカム構造体内の温度を不均一にするため好ましくない。一方、熱伝導率が  $5 \text{ W/m} \cdot \text{K}$  を超える場合には、接合強度が低下すると共に、製造上困難となる。

- 接合材 1 1 の熱膨張率としては、熱衝撃などでクラックが生ずるのを防ぐ必要上、比較的低いことが好ましい。このため、熱膨張率は、 $1 \times 10^{-6} \sim 8 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$  の範囲で  
20 あることが好ましく、 $1.5 \times 10^{-6} \sim 7 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$  の範囲であることがさらに好ましく、 $2 \times 10^{-6} \sim 6 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$  の範囲であることが最も好ましい。

- スペーサ 1 0 の材料としては、ハニカムセグメント 2 や接合材 1 1 と同質のものや金属、樹脂やゴムなどの有機材  
25 料を使用することができる。

ハニカム構造体を DPF として用いる場合においては、接合層 9 に局所的な空隙があると周囲との熱伝導率差が生じ、応力集中が起こるため、DPF の耐久性を低下させることがある。この点を考慮する場合、スペーサ 1 0 として

は、D P F が使用される 1 2 0 0 °C 程度の耐熱性を有することが好ましく、材料としてはセラミック、無機物質、金属等を用いることができる。特に、接合材 1 1 に近い材料組成や高温物性、例えば熱膨張率、熱伝導率等を有する材料が好ましい。

本発明の実施の形態に係るハニカム構造体では、二つのハニカムセグメント 2 間、例えば図 6 に示すハニカムセグメント 2 1 と 2 2 との間に配置されるスペーサ 1 0 と接合層 9 との面積比率及びスペーサ 1 0 のヤング率を以下のように設定する。すなわち、スペーサ 1 0 の面積を接合層 9 の面積に対し、0 . 2 ~ 3 0 % の割合とする。この面積の比率は、0 . 4 ~ 2 5 % であることがさらに好ましく、0 . 6 ~ 2 0 % であることが最も好ましい。接合層 9 の面積に対するスペーサ 1 0 の面積割合が 0 . 2 % 未満では、二つのハニカムセグメント 2 1 と 2 2 との間隙を一定に保持し、接合層の厚さを均一にするという効果が発揮できない。また 3 0 % を超えるとハニカムセグメント 2 1 と 2 2 相互の接着強度が低下してハニカム構造体としての耐久性に支障となるためである。なお、接合層 9 は、スペーサ 1 0 を覆うように形成するため、接合層 9 の面積はハニカムセグメント 2 の接合面 2 1 a 面積に相当し、スペーサ 1 0 の面積も含む。

しかしながら、上記する面積割合の範囲を満たす場合でも、複数のハニカムセグメント 2 を外部から加圧し、接合させる際に、スペーサ 1 0 がハニカムセグメント 2 へダメージを与え、スペーサ 1 0 の食い込みによるハニカムセグメント 2 の破損あるいはハニカム構造体 1 のアイソスタティック強度の低下が生じる場合がある。

そこで、本実施の形態のハニカム構造体では、上述した

面積割合に関する条件に加えて、スペーサ 10 のヤング率を  $0.1 \sim 1.5 \text{ GPa}$  の範囲に設定している。上記範囲のヤング率を持つスペーサ 10 を使用することで、接合時にスペーサ 10 がハニカムセグメント 2 へ食い込むことを防止できるため、ハニカムセグメント 2 へのダメージを抑制できる。また、スペーサの食い込みがないので接合層 9 の厚みをスペーサ 10 により正確に調整できる。

スペーサ 10 のヤング率は上述の  $0.1 \sim 1.5 \text{ GPa}$  であるが、好ましくは  $0.15 \sim 1.2 \text{ GPa}$  の範囲、さらに好ましくは  $0.2 \sim 0.7 \text{ GPa}$  の範囲である。このように設定することにより、接合層 9 の厚みのばらつきが減少し、アイソスタティック強度試験での低値破壊を防ぐことが可能となる。なお、ヤング率が  $0.1 \text{ GPa}$  未満の場合には、スペーサとしての間隙維持機能が減少し、接合層厚みのばらつきが増大する。一方、ヤング率が  $1.5 \text{ GPa}$  を超えると、ハニカムセグメント 2 の接合の際に加わる外部圧力によりスペーサ 10 の食い込みが生じ、ハニカムセグメント 2 の破損あるいはハニカム構造体のアイソスタティック強度の低下が起こる。

本実施の形態のスペーサ 10 材料として、セラミックを使用することもできる。セラミックのヤング率は一般に高いが、気孔率を  $35 \sim 90\%$  に調整することでヤング率が  $0.1 \sim 1.5 \text{ GPa}$  の範囲を満たすスペーサ材にすることができる。

セラミックの気孔率を  $35 \sim 90\%$  の範囲にするためには、セラミックに造孔材を添加することで調整できる。好適な造孔材としてはバルーン状に発泡した発泡樹脂等の各種有機物、シラスバルーン、フライアッシュバルーン等の各種無機物などを使用することができる。また、小麦粉、

澱粉、フェノール樹脂、ポリメタクリル酸メチル、ポリエチレン、ポリメタクリレート、ポリエチレンテレフタレート等を用いることも可能である。造孔材としては、1種または2種以上を組み合わせる用いることができる。

- 5      ハニカム構造体1をDPFとして用いる場合には、流通孔5の開口部を充填材7によって目封じすることが好ましく、さらに端面を交互に市松模様状になるように目封じすることが好ましい。充填材7による目封じは、ハニカムセグメント2の端面を樹脂フィルムによって覆い、目封じしない流通孔5をそのままとした状態で目封じする流通孔5  
10      の端面に対してレーザ光を照射して開口し、開口された流通孔5にスラリー状の充填材を圧入することにより行うことができる。この圧入の後、乾燥し、焼成することにより充填材7による目封じを行う。充填材7としては、ハニカムセグメント2と同様な材料を用いることができる。  
15

### 実施例

- 原料として、SiC粉末及び金属Si粉末を80:20の質量割合で混合し、これに造孔材として澱粉、発泡樹脂  
20      を加え、さらにメチルセルロース及びヒドロキシプロポキシルメチルセルロース、界面活性剤及び水を添加して、可塑性の坯土を作製した。この坯土を押出成形し、マイクロ波及び熱風によって乾燥して隔壁の厚さが310 $\mu$ m、セル密度が約46.5セル/cm<sup>2</sup>(300セル/平方インチ)、  
25      断面が一辺35mmの正方形、長さが152mmのハニカムセグメントを作製した。

次に、ハニカムセグメントの端面が市松模様状を呈するように、隣接する流通孔が互いに反対側となる一方の端部でハニカムセグメントに用いた材料と同様の材料で目封じ

して、乾燥させた後、大気雰囲気中で約 400℃で脱脂し、その後 Ar 不活性雰囲気中で約 1450℃で焼成して、Si 結合 SiC のハニカムセグメントを得た。

また、炭化珪素 45 質量%、アルミノシリケート繊維 28 質量%、シリカゾル 20 質量%、粘土 1 質量%、水 6 質量%を混合して、接合材であるスラリーを作製した。

また、上記接合材スラリーに対し、発泡樹脂を添加し、これを乾燥固化して 1mm 厚のスペーサ 1～4 を作製した。なお、スペーサ 1～4 は、添加する発泡樹脂の量を変え、気孔率を調整した。また、ハニカムセグメントと同じ材料で 1mm 厚のスペーサ 5 を作製した。スペーサ 1～5 のヤング率、気孔率を表 1 に示す。

なお、スペーサのヤング率は、JIS R1601 に準じた 3 点曲げ試験により測定した。また、スペーサの気孔率としては、JIS R2205 に準じて見掛け気孔率を測定した。

表 1

スペーサ No.	ヤング率 (Gpa)	気孔率 (%)
1	0.5	75
2	1.2	50
3	0.08	95
4	2.0	20
5	30	50

ヤング率が 0.5 GPa であるスペーサ 1 のサイズが異なるものを 4 種用意し、それぞれのサイズのスペーサ 1 を使用して、二つのハニカムセグメントの接合を以下の手順で行い、ハニカムセグメント接合体 1～4 を作製した。すなわち、一方のハニカムセグメントの接合面上にスペーサ 1 を固定し、さらにその上に接合材を塗布した後、接合材

の塗布面上にもう一方のハニカムセグメントを積層し、上下から  $2 \text{ kg f / cm}^2$  の圧力をかけ、 $200^\circ\text{C}$  で5時間乾燥させて、二つのハニカムセグメントを接合させた。同様な手順で、スペーサ1のサイズごとに、10組のハニカムセグメント接合体を作製した。各ハニカムセグメント接合体について、二つのハニカムセグメント間の距離、すなわち接合層の厚みを測定し、その最小値－最大値を接合層の厚みのばらつきとした。

また、各ハニカムセグメント接合体について、図7に示す方法で接合強度を測定した。すなわち、2本のハニカムセグメント21, 22を接合したサンプルにおける一方のハニカムセグメント22を治具100で固定し、もう一方のハニカムセグメント21に対し長軸方向から荷重Fをかけることにより、接合強度を測定した。

表2に、各ハニカムセグメント接合体について、スペーサ面積と接合層の面積の比率、接合層の厚みのばらつき、及び接合強度の平均を示した。

表 2

ハニカムセグメント接合体	(スペーサ面積) / (接合層の面積) $\times 100$ (%)	接合層の厚みのばらつき(mm)	接合強度 (kPa)
実施例1	10	1.1－1.3	270
実施例2	4	1.1－1.4	280
比較例1	0.1	0.3－1.1	300
比較例2	50	1.1－1.3	150

表2に示すように、スペーサの面積が接合層の面積の0.2%よりも小さいと接合層の厚みのばらつきが大きく、使用時の熱応力集中の原因となる。一方、30%より大きいと接合強度が著しく低下した。

次に、表 1 に示すスペーサ 1 ～ 5 を用いて、スペーサの面積が接合層の面積の 10 % となる条件で、上述したのと同様の手順でハニカムセグメント接合体を作製した。

その後、ハニカムセグメント接合体から各ハニカムセグメントを引き剥がし、ハニカムセグメントの接合面の表面観察を行なった。

また、同様に 16 本のハニカムセグメント接合体を作製した後、外周を研削、コーティングすることにより直径 14.4 mm × 15.2 mm のハニカム構造体を作製し、アイソスタティック強度の測定を行った。結果を表 3 に示す。

表 3

	使用した スペーサ No.	接合層の厚みの ばらつき (mm)	剥離後の 接合部外 観	アイソスタッ ク強度 (MPa)	破壊 箇所
実施例 3	1	1.1 - 1.3	変化無し	12	外周部
実施例 4	2	1.1 - 1.3	変化無し	10	外周部
比較例 3	3	0.4 - 1.1	変化無し	12	外周部
比較例 4	4	1.0 - 1.3	変化無し	4	スペーサ 近傍
比較例 5	5	0.8 - 1.4	破損	—	—

表 3 の結果から分かるように、ヤング率が 1.5 GPa より大きいスペーサ 4 を使用した比較例 4 のハニカム構造体では、アイソスタティック強度試験の際にスペーサ近傍で低値で破壊した。

また、ヤング率がさらに大きいと接合のため圧力をかけた際に、スペーサがハニカムセグメントに食い込んでハニカムセグメントを破損した。一方、ヤング率が 0.1 GPa よりも小さいと、接合層の厚みのばらつきが大きくなり、使用時の熱応力集中の原因となる。

以上に説明したように、本発明のハニカム構造体及びその製造方法によれば、隣接し合うハニカムセグメントの間に配置されるスペーサのヤング率を  $0.1 \sim 1.5 \text{ GPa}$ 、接合層の面積に対するスペーサの面積比率  $0.2 \sim 30\%$  を所定の範囲に設定することにより、ハニカムセグメントの接合時に加わる圧力によっても、スペーサがハニカムセグメントに食い込むことがなく、ハニカムセグメントへのダメージを抑制することができるとともに、十分な接合層の面積確保することで良好な接合強度、均一な厚みの接合層を得ることができる。



## 請求の範囲

1. 多孔質の隔壁により仕切られた、一軸方向に貫通する複数の流通孔を有する複数のハニカムセグメントと、

5 前記複数のハニカムセグメントのうち、隣接し合うハニカムセグメント間に配置されたスペーサと、

前記スペーサが配置された、ハニカムセグメント間に在り、前記隣接し合うハニカムセグメントを接合する接合層とを有し、

10 前記スペーサは、ヤング率が  $0.1 \sim 1.5 \text{ GPa}$  であり、かつ、前記隣接しあう各ハニカムセグメント間における前記接合層の面積に対する前記スペーサの面積の比率が  $0.2 \sim 30\%$  である、ハニカム構造体。

15 2. 前記スペーサは、 $35 \sim 90\%$  の気孔率を有する、請求項 1 に記載のハニカム構造体。

3. 前記スペーサは、造孔材を含む、請求項 2 に記載のハニカム構造体。

20

4. 前記スペーサは、セラミックスで形成されている、請求項 2 または 3 に記載のハニカム構造体。

25 5. 前記ヤング率は、 $0.15 \sim 1.2 \text{ GPa}$  である、請求項 1 に記載のハニカム構造体。

6. 前記接合層の面積に対する前記スペーサの面積の比率は、 $0.4 \sim 25\%$  である、請求項 1 に記載のハニカム構造体。

7. 多孔質の隔壁により仕切られ、一軸方向に貫通する複数の流通孔を有する、一のハニカムセグメントの一外周面である接合面上に、ヤング率が  $0.1 \sim 1.5 \text{ GPa}$  のスペーサを、前記接合面の面積に対し前記スペーサの面積の比率が  $0.2 \sim 30\%$  となるように、配置する工程と、

5 前記スペーサが固定された前記接合面上に接合材をコーティングする工程と、

前記接合面上に、他のハニカムセグメントを積層し、ハニカムセグメント積層体を形成する工程と、

10 前記ハニカムセグメント積層体に外部より圧力をかけて、一のハニカムセグメントと他のハニカムセグメントとを接合する工程とを有するハニカム構造体の製造方法。

8. 前記スペーサとして、 $35 \sim 90\%$  の気孔率を有する  
15 スペーサを使用する、請求項 7 に記載のハニカム構造体の製造方法。

9. 前記スペーサは、造孔材を用いて前記気孔率が調整されたものである、請求項 8 に記載のハニカム構造体の製造  
20 方法。

1/3

FIG.1

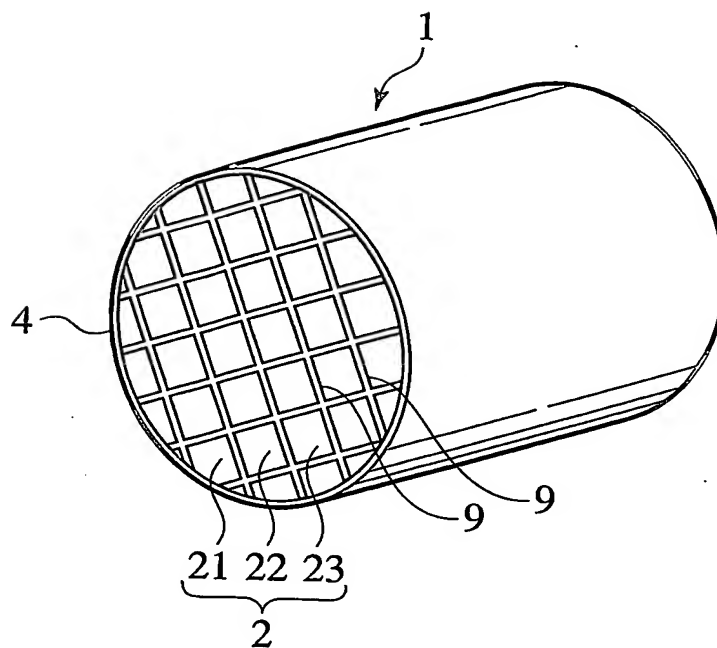


FIG.2

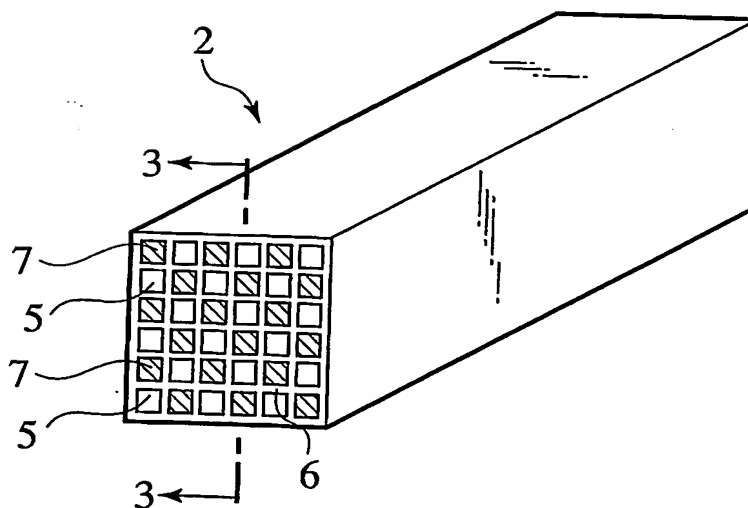
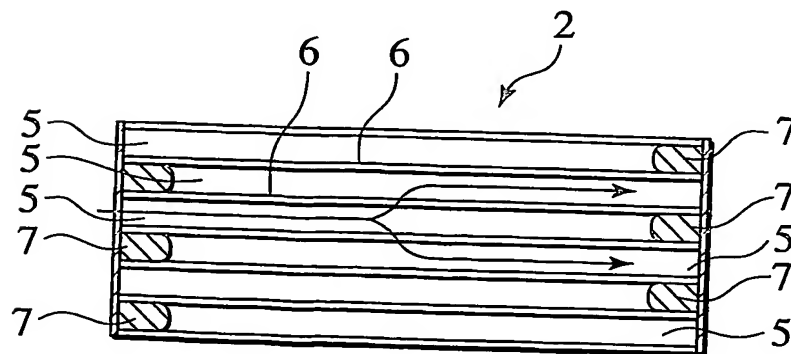


FIG.3



2/3

FIG.4

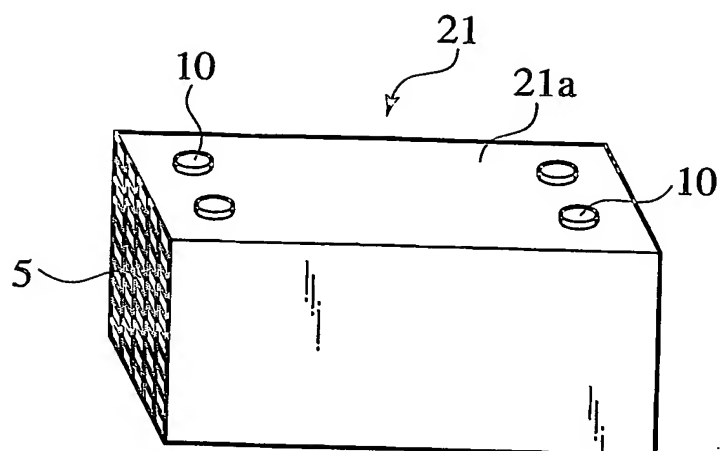


FIG.5

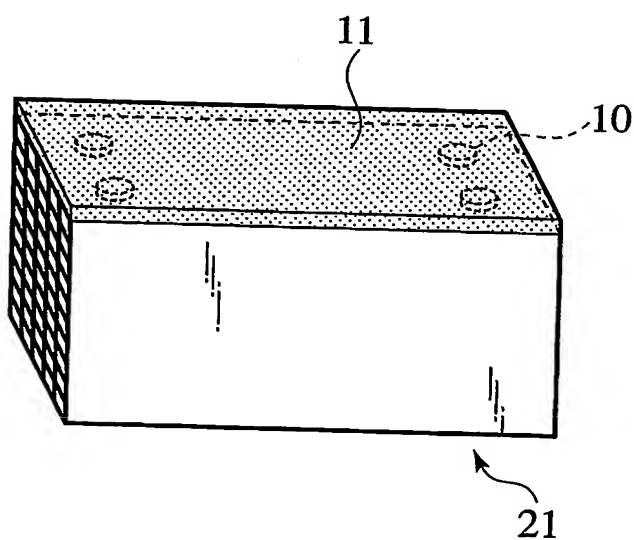


FIG.6

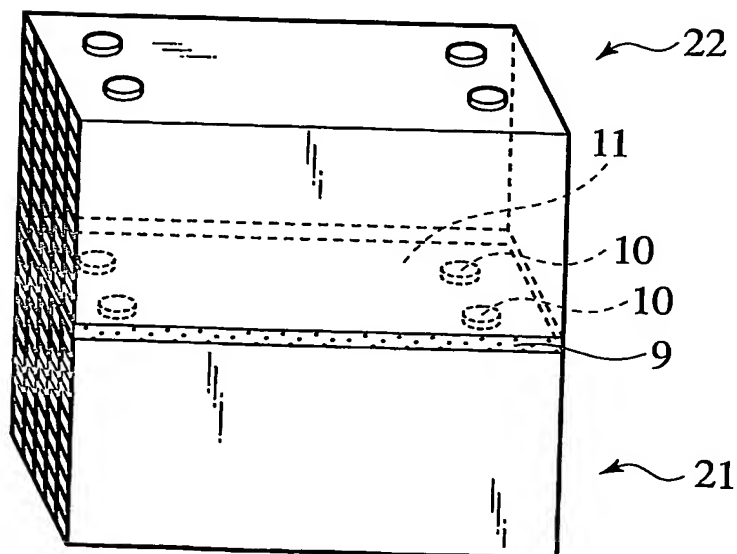
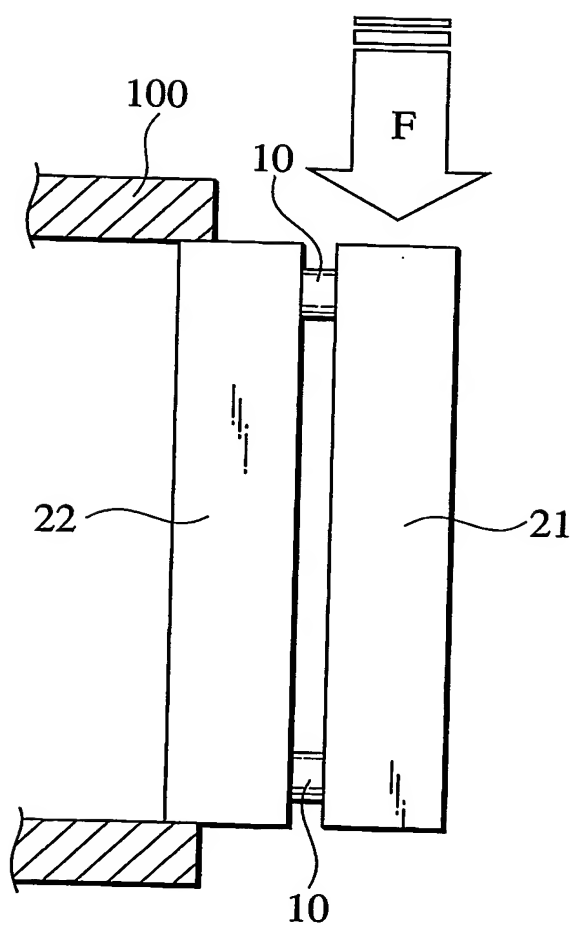


FIG. 7



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/003672

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C04B37/00, B01D39/20, B01D46/00, F01N3/022

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C04B37/00, B01D39/20, B01D46/00, B01J35/04, F01N3/022, F01N3/28

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2004	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 02/01800 A1 (NGK Insulators, Ltd.), 12 September, 2002 (12.09.02), Page 14, line 26 to page 15, line 23; page 16, lines 7 to 9; Figs. 8, 12 & JP 2002-253916 A & EP 1366792 A1 & US 2003-138596 A1	1-9
A	JP 2002-060279 A (NGK Insulators, Ltd.), 26 February, 2002 (26.02.02), Claims; Par. Nos. [0065] to [0071]; Fig. 8 & EP 1291061 A1 & US 2003-053940 A1 & WO 01/93984 A1	1-9

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
26 May, 2004 (26.05.04)

Date of mailing of the international search report  
15 June, 2004 (15.06.04)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/003672

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2002-273124 A (NGK Insulators, Ltd.), 24 September, 2002 (24.09.02), Par. Nos. [0041] to [0048]; Fig. 1 & EP 1283067 A1 & US 2003-140608 A1 & WO 02/074417 A1	1-9
A	JP 4-367574 A (Sumitomo Cement Co., Ltd.), 18 December, 1992 (18.12.92), Claims. (Family: none)	1-9
P,A	WO 03/031371 A1 (NGK Insulators, Ltd.), 17 April, 2003 (17.04.03), Claims; Figs. 4, 5 (Family: none)	1-9

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C04B37/00, B01D39/20, B01D46/00, F01N3/022

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C04B37/00, B01D39/20, B01D46/00, B01J35/04, F01N3/022, F01N3/28

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2004年
日本国実用新案登録公報	1996-2004年
日本国登録実用新案公報	1994-2004年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	WO 02/01800 A1 (日本碍子株式会社) 2002. 09. 12, 第14頁第26行-第15頁第23行, 第16頁第7-9行 第8, 12図 & JP 2002-253916 A & EP 1366792 A1 & US 2003-138596 A1	1-9
A	JP 2002-060279 A (日本碍子株式会社) 2002. 02. 26, 特許請求の範囲, [0065] - [0071], [図8] & EP 1291061 A1 & US 2003-053940 A1 & WO 01/93984 A1	1-9

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

26. 05. 2004

国際調査報告の発送日

15. 6. 2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

村守 宏文

4T

9729

電話番号 03-3581-1101 内線 6791



C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2002-273124 A (日本碍子株式会社) 2002.09.24, [0041] - [0048], [図1] & EP 1283067 A1 & US 2003-140608 A1 & WO 02/074417 A1	1-9
A	JP 4-367574 A (住友セメント株式会社) 1992.12.18, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-9
PA	WO 03/031371 A1 (日本碍子株式会社) 2003.04.17, 特許請求の範囲, 図4, 5 (ファミリーなし)	1-9